

(51)

Int. Cl. 2:

C 09 D 3-00

(19) BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

DEUTSCHES PATENTAMT



DT 24 36 191 A1

(11)

Offenlegungsschrift 24 36 191

(21)

Aktenzeichen:

P 24 36 191.9-43

(22)

Anmeldetag:

26. 7. 74

(43)

Offenlegungstag:

6. 3. 75

(50)

Unionspriorität:

(32) (33) (31)

27. 7. 73 Japan 84147-73

12. 3. 74 Japan 27752-74

8. 4. 74 Japan 38783-74

16. 4. 74 Japan 41731-74

(54)

Bezeichnung:

Überzugszusammensetzung

(71)

Anmelder:

Teijin Chemicals Ltd., Tokio

(74)

Vertreter:

Zumstein sen., F., Dr.; Assmann, E., Dipl.-Chem. Dr.rer.nat.;
Koenigsberger, R., Dipl.-Chem. Dr.; Holzbauer, R., Dipl.-Phys.;
Zumstein jun., F., Dipl.-Chem. Dr.rer.nat.; Pat.-Anwälte, 8000 München

(72)

Erfinder:

Sakurai, Tsuneo, Hino; Sasama, Shigeru, Tachikawa; Tokio (Japan)

Prüfungsantrag gem. § 28b PatG ist gestellt

ORIGINAL INSPECTED

2436191

Dr. F. Zumsteln sen. - Dr. E. Assmann
Dr. R. Koenigsberger - Dipl.-Phys. R. Holzbauer - Dr. F. Zumsteln Jun.
PATENTANWÄLTE

TELEFON: SAMMEL-NR. 22 53 41,
TELEX 529979
TELEGRAMME: ZUMPAT
POSTSCHECKKONTO:
MÜNCHEN 911 39 - 809, BLZ 700 100 80
BANKKONTO: BANKHAUS H. AUFHÄUSER
KTO.-NR. 397997, BLZ 700 306 00

8 MÜNCHEN 2.
BRÄUHAUSSTRASSE 4

53/My
Case F2101-K12
(KASEI)/HSH

TEIJIN CHEMICALS, LTD.
T o k y o / Japan

Überzugszusammensetzung

Die Erfindung betrifft Überzugszusammensetzungen oder Beschichtungsmaterialien und insbesondere eine Überzugszusammensetzung, die geeignet ist, um Formgegenständen aus einer organischen Verbindung mit hohem Molekulargewicht Oberflächenhärte, Abriebsbeständigkeit und chemische Beständigkeit zu verleihen.

Im allgemeinen ist die Verwendung von Formkörpern aus organischen Verbindungen mit hohem Molekulargewicht begrenzt, da die niedrige Oberflächenhärte bedingt, daß diese Gegenstände verletzt werden können.

Wenn die Abriebsbeständigkeit und die Friktionsbeständigkeit von Formkörpern aus Polycarbonat- oder Polymethylmethacrylatharz, die überlegene Transparenz besitzen, verbessert werden können, werden diese Stoffe auf verschiedenen Anwendungsgebieten, insbesondere als Glasersatz, Verwendung finden können.

509810/1099

Um dies zu realisieren, wurden bis heute viele Untersuchungen durchgeführt.

Um einige Beispiele zu zitieren, sei erwähnt, daß bekannt sind: (1) ein Verfahren, bei dem ein Dampf aus SiO_2 im Vakuum abgeschieden wird (vergl. publizierte japanische Patentanmeldung 32953/70); (2) ein Verfahren, bei dem hydrolysierte Produkte aus Methyltrialkoxysilanen und Phenyltrialkoxysilanen zum Beschichten verwendet werden (US-PS 3 451 838); (3) ein Verfahren, bei dem hydrolysierte Produkte aus Aminoalkoxysilanen und Epoxyalkoxysilanen zum Beschichten verwendet werden (vergl. offengelegte publizierte japanische Patentanmeldung 84878/73); (4) ein Verfahren, bei dem eine Masse zum Beschichten verwendet wird, die hydrolysierte Produkte von Tetraalkoxysilanen und Alkyltrialkoxysilanen und ein Alkalimetallsalz einer organischen Carbonsäure enthält (vergl. offengelegte publizierte japanische Patentanmeldung 56230/73), und (5) ein Verfahren, bei dem eine Masse zum Beschichten verwendet wird, die veräthertes Methylolmelamin und ein Nitrocellulose-polyalkylenglykol oder ein Alkylenglykol enthält (vergl. offengelegte publizierte japanische Patentanmeldung 21767/73).

Bei dem obigen Verfahren (1) ist jedoch die Adhäsion des Siliciumdioxids an dem polymeren Formkörper nicht ausreichend und komplizierte Stufen sind erforderlich. Das Verfahren (1) ist daher für technische Massenproduktion ungeeignet. Die Verfahren (2) und (3) besitzen den Nachteil, daß die Überzugslösungen kondensieren und gelieren und daß der entstehende Überzug zu spröde wird und eine schlechte Wetterbeständigkeit aufweist. Bei dem Verfahren (4) besitzt die Masse eine schlechte Adhäsion, ausgenommen gegenüber einem Polymethylmethacrylatharz, und ist daher in ihrer Verwendung beschränkt, und das Verfahren besitzt weiterhin den Nachteil, daß feine Risse auftreten, wenn das Material relativ kurze Zeiten verwendet wurde. Das Verfahren (5) besitzt den Nachteil, daß die Härte und Wetterbeständigkeit der erhaltenen Überzüge ungenügend sind.

509810/1099

Alle oben beschriebenen bekannten Verfahren ergeben bei der Wetterbeständigkeit Schwierigkeiten, und es ist nicht möglich, eine ausreichende Härte und Adhäsion zu erreichen, selbst wenn man die Materialien nur relativ kurze Zeiten verwendet. Bei vielen dieser Verfahren treten im Aussehen Abnormalitäten auf oder die Oberflächenhärte und die Adhäsion werden nach dem Bewitterungsversuch entsprechend einem Jahr oder einem Wasserbeständigkeitsversuch während ungefähr 3 Tagen stark verschlechtert.

Der vorliegenden Erfindung liegt somit die Aufgabe zugrunde, eine Zusammensetzung zu schaffen, mit der man einen Überzug auf Oberflächen von Formkörpern schaffen kann, der eine große Härte und chemische Beständigkeit besitzt, wobei der Formkörper aus hochmolekularen organischen Verbindungen hergestellt ist und wobei die Oberfläche des Formkörpers vor Friktionsverletzungen und Abnutzung geschützt ist.

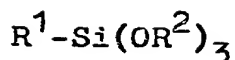
Der vorliegenden Erfindung liegt außerdem die Aufgabe zugrunde, eine Überzugszusammensetzung zu schaffen, die fest an der Oberfläche des Formkörpers, der aus einer organischen hochmolekularen Verbindung hergestellt ist, haftet, wobei die Adhäsion, Härte und chemische Beständigkeit nicht verschlechtert werden während längerer Gebrauchsdauer.

Gegenstand der Erfindung ist eine Überzugszusammensetzung, die enthält

- (A) ein hydrolysiertes Produkt aus einem Alkoxysilan,
- (B) ein organisches Lösungsmittel und
- (C) einen Härtungskatalysator,

die dadurch gekennzeichnet ist, daß die Zusammensetzung weiter enthält

(D) ein schmelzbares und lösliches Aminoharz, und daß die Komponente (A) ein hydrolysiertes Produkt von mindestens einem Organotrialkoxysilan wie Alkyltrialkoxysilane, Alkenyltrialkoxysilane und/oder Phenyltrialkoxysilane, ausgedrückt durch die folgende Formel



ist, worin

R^1 eine Alkyl- oder Alkenylgruppe mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder eine Phenylgruppe und

R^2 eine Alkylgruppe mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen bedeuten.

Beispiele von Organotrialkoxysilanen [Komponente (A)], die bei der vorliegenden Erfindung verwendet werden können, sind niedrig-Alkyl-tri-(niedrig-alkoxy)-silane, die 1 bis 4 Kohlenstoffatome enthalten, wie Methyltrimethoxysilan, Methyltriäthoxysilan, Methyltributoxysilan, Äthyltrimethoxysilan, Äthyltriäthoxysilan oder Butyltrimethoxysilan; Alkenyl-tri-(niedrig-alkoxy)-silane wie Vinyltrimethoxysilan, Vinyltriäthoxysilan oder Allyltrimethoxysilan, und Phenyl-tri-(niedrig-alkoxy)-silane wie Phenyltrimethoxysilan oder Phenyltriäthoxysilan. Diese Organotrialkoxysilane werden in Form ihrer Hydrolysate verwendet.

Der Härtungskatalysator [Komponente (C)], der bei der vorliegenden Erfindung verwendet wird, kann beispielsweise sein eine Säure, ein Metallsalz einer Carbonsäure oder ein Metallkomplex. Die Säure ist insbesondere bevorzugt.

Beispiele von geeigneten Katalysatoren sind anorganische oder organische Säuren wie Chlorwasserstoffsäure, Schwefelsäure, Phosphorsäure oder p-Toluolsulfonsäure; Natriumacetat; die Zinksalze von organischen Carbonsäuren wie Zinkoctylat, Zinkstearat oder Zinknaphthenat oder Zinkacetylacetonat.

Die geeignete Menge an Härtungskatalysator beträgt 0,01 bis 10 Gew.Teile, bevorzugt 0,1 bis 1,0 Gew.Teile, pro 100 Gew.-Teile des Hydrolysats aus dem Organotrialkoxysilan. Wenn die Menge geringer ist als die untere, oben angegebene Grenze, kann man bei der Verwendung des Katalysators kaum eine Wirkung erwarten. Wenn andererseits die Menge die obere Grenze überschrei-

tet, nimmt die Viskosität der Überzugslösung zu, während in der Härte des Überzugs keine Erhöhung stattfindet, und die Lagerbeständigkeit der Überzugslösung wird zu kurz oder der Überzug verliert seine Transparenz.

Die oben erwähnte Säure wird zum Zeitpunkt der Hydrolyse des Organotrialkoxysilans verwendet. Wenn das Hydrolysat direkt verwendet wird, ist es nicht erforderlich, die Säure getrennt zuzufügen, da das Hydrolysat sie enthält.

Ein neuer Aspekt der vorliegenden Erfindung liegt darin, daß die erfindungsgemäße Überzugszusammensetzung weiter ein Aminoharz [Komponente (D)] in schmelzbarem und löslichem Zustand zusätzlich zu dem Organotrialkoxysilan (A) und dem Härtungskatalysator (C) enthält.

Die Ausdrücke "ein Aminoharz in schmelzbarem oder löslichem Zustand" und "ein schmelzbares und lösliches Aminoharz" werden in der gleichen Bedeutung verwendet und bedeuten, daß ein Amin-Aldehyd-Reaktionsprodukt in schmelzbarem und löslichem Zustand vorliegt, welches mindestens eine Methylolgruppe ($-\text{CH}_2\text{OH}$) oder verätherte Methylolgruppe ($-\text{CH}_2\text{OR}$, worin R eine niedrig-Alkylgruppe bedeutet), gebunden an das Stickstoffatom des Amins, enthält und durch die Einwirkung von Wärme und/oder Katalysator gehärtet werden kann, so daß es unschmelzbar und unlöslich ist.

Beispiele von Aminoharzen sind methylolierte Produkte von Aminen wie Harnstoff, Melamin, Tetraäthylenpentamin oder Benzoguanamin, bevorzugt verätherte Produkte davon wie Hexamethylolmelamin, Pentamethylolmelamin oder Tetramethylolmelamin, bevorzugt jene, worin ein Teil oder die gesamte Methylolgruppe methyliert, äthyliert, propyliert oder butyliert ist. Diese Harze können entweder allein oder als Mischung aus zwei oder mehreren verwendet werden.

Die Menge an schmelzbarem und löslichem Aminoharz (D) beträgt

10 bis 300 Gew.Teile, bevorzugt 50 bis 200 Gew.Teile, pro 100 Gew.Teile Trialkoxysilan (A), berechnet als $R^1SiO_{1,5}$.

Die Komponente (D) trägt zu der Adhäsion und Dauerhaftigkeit der Zusammensetzung bei. Wenn die Menge an Komponente (D) geringer ist als die untere, oben angegebene Grenze, sind die Adhäsion und Härte der entstehenden Überzüge nicht ausreichend. Wenn die Menge 300 Gew.Teile überschreitet, wird die Oberflächenhärte des Überzugs fast gleich wie die des Aminoharzes. Dies ergibt nicht nur eine unzureichende Härte, sondern ebenfalls eine Abnahme in der Adhäsion nach dem Bewitterungsversuch.

Wenn die Zusammensetzung überhaupt kein schmelzbares und lösliches Aminoharz enthält, nimmt die Oberflächenhärte des entstehenden Überzugs stark ab, und man nimmt an, daß das Aminoharz die Funktion hat, das Härten in der Wärme des Organotrialkoxysilan-hydrolysats zu aktivieren.

Die Hydrolyse des Organotrialkoxysilans wird üblicherweise durchgeführt, indem man ungefähr 0,5 bis 1,5 Äqu. Wasser bei 20 bis 50°C zu dem Organotrialkoxysilan in mindestens 50 Gew.-Teilen/100 Gew.Teile des Organotrialkoxysilans eines Alkohols zufügt, der 1 bis 4 Kohlenstoffatome enthält, wobei man in Anwesenheit eines sauren Katalysators arbeitet. Es ist bekannt, daß bei einem solchen Hydrolyseverfahren das entstehende hydrolysierte Produkt ein Präkondensat aus Organotrialkoxysilan zusätzlich zu dem reinen Hydrolysat des Organotrialkoxysilans enthält. Ein solches Hydrolysat, das das Präkondensat enthält, kann ebenfalls bei dem erfindungsgemäßen Verfahren verwendet werden.

Das Vermischen des Aminoharzes (D) mit dem Hydrolysat (A) kann durch einfaches Vermischen dieser Komponenten, die getrennt hergestellt werden, erfolgen. Es ist ebenfalls möglich, dieses Vermischen durch Hydrolysieren des Organotrialkoxysilans in Anwesenheit des schmelzbaren und löslichen Aminoharzes durchzuführen.

509810/1099

Die erfindungsgemäße Überzugszusammensetzung wird in Form einer Lösung in einem organischen Lösungsmittel (B) für die obigen Komponenten (A), (C) und (D) verwendet. Das organische Lösungsmittel (B) kann irgendein organisches Lösungsmittel sein, welches die Komponenten (A), (C) und (D) löst und die polymeren Formgegenstände, auf die die erfindungsgemäße Überzugszusammensetzung aufgebracht wird, nicht merklich beschädigt. Bevorzugt werden niedrige Alkohole wie Äthanol, Propanol oder Butanol entweder allein oder vermischt verwendet. Man kann auch ein Lösungsmittel, das möglicherweise den polymeren Formkörper löst, verwenden, sofern dies gefordert ist, und das Lösungsmittel in kleinen Mengen verwendet wird. Solche Lösungsmittel umfassen beispielsweise Chlor enthaltende Verbindungen wie Methylenchlorid, Ketone wie Aceton oder Methylisopropylketon, Ester wie Äthylacetat oder Butylacetat, aromatische Verbindungen wie Toluol oder Xylol oder Äther wie Dioxan. Es ist derzeit wünschenswert, daß die Konzentration an Feststoffen in der Lösung auf 5 bis 40 Gew.% eingestellt wird. Die individuellen Komponenten (gewünschtenfalls ebenfalls ein Katalysator) werden mit dem obigen Lösungsmittel vermischt und geeigneterweise wird die Zusammensetzung verwendet, nachdem sie mindestens einen Tag gealtert wurde. Wenn das Altern nicht ausreicht, verliert der beschichtete Film manchmal seine Transparenz.

Die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen können ebenfalls ein hydrolysiertes Produkt eines Kieselsäureesters (Komponente E) der Formel $\text{Si}(\text{OR}^2)_4$ enthalten, worin R^2 die gleiche Bedeutung besitzt wie oben, zusätzlich zu dem hydrolysierten Produkt des Organoalkoxysilans (A), dem Härtungskatalysator (C), dem Aminoharz (D) und dem Lösungsmittel (B).

Die Mitverwendung der Komponente (E) ermöglicht eine bemerkenswerte Erhöhung in der Härte und Steigerung in den Oberflächeneigenschaften (wie ein niedriger Reibungskoeffizient) in dem entstehenden Überzug.

Beispiele von Kieselsäureestern (Tetraalkoxysilan) sind Methyl-, Äthyl-, Propyl- und Butylester von Kieselsäure.

Wenn die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen das hydrolysierte Produkt von Kieselsäure (E) enthalten, so wird seine Menge bevorzugt so gewählt, daß das Molverhältnis der Komponente (E), berechnet als SiO_2 , zu der Komponente (A), berechnet als $\text{R}^1\text{SiO}_{1,5}$, 100:1 bis 20:80, bevorzugt 80:20 bis 40:60, beträgt. Wenn die Menge an Komponente (E) zu groß ist, wird die Hydrolysebeständigkeit des beschichteten Films vermindert und die Härte des Überzugs nach einem Wassereintauchtest wird stark vermindert. Außerdem wird die Adhäsion des Überzugs nach dem Bewitterungsversuch vermindert. Wenn die Menge geringer ist als die untere, oben angegebene Grenze, so wird die Härte des Überzugs vermindert und seine Schlüpfrigkeit verschlechtert.

Wenn die erfindungsgemäße Zusammensetzung die Komponente (E) enthält, beträgt die Menge an Aminoharz (D) bevorzugt 10 bis 300 Gew.Teile, mehr bevorzugt 50 bis 200 Gew.Teile, pro 100 Gew.Teile der Gesamtmenge an Komponente (A), berechnet als $\text{R}^1\text{SiO}_{1,5}$, und der Komponente (E), berechnet als SiO_2 .

Das hydrolysierte Produkt der Kieselsäureester [Komponente (E)] kann auf gleiche Weise hergestellt werden, wie es bei der Herstellung des hydrolysierten Produktes des Organotrialkoxysilans [Komponente (A)] beschrieben ist. In diesem Fall enthält das hydrolysierte Produkt ein Präkondensat dieses Esters, gleich wie im Falle des hydrolysierten Produktes von Organotrialkoxysilan. Die Hydrolyse des Kieselsäureesters kann gleichzeitig mit der Hydrolyse des Organotrialkoxysilans in dem gleichen System erfolgen. Sie können auch getrennt durchgeführt werden und dann können die entstehenden Hydrolysate vermischt werden. Zu diesem Zeitpunkt kann ein Organodialkoxysilan wie Dimethyldimethoxysilan oder Diphenyldiäthoxysilan in einer Menge von nicht mehr als 50 Mol% , bezogen auf das Organotrialkoxysilan, zugefügt werden. Die obigen Hydrolysereaktionen können ebenfalls in Anwesenheit des Aminoharzes (D) durchgeführt werden.

509810/1099

Wenn das hydrolysierte Produkt des Kieselsäureesters [Komponente (E)] in der Zusammensetzung enthalten ist, ist es bevorzugt, daß es zusammen mit Polyvinylbutyral [Komponente (F)] vorliegt. Die Verwendung von Polyvinylbutyral verhindert, daß der Überzug durch die Kondensation des hydrolysierten Produkts des Kieselsäureesters (E) zu hart wird, und verleiht dem Überzug Flexibilität.

Gewöhnliche Polyvinylbutyrale können als Komponente (F) verwendet werden, aber jene, die einen Polymerisationsgrad von 200 bis 500 und einen Butyralisierungsgrad von 55 bis 65% besitzen, sind bevorzugt. Die Menge an Polyvinylbutyral beträgt 1 bis 60 Gew.Teile, bevorzugt 20 bis 40 Gew.Teile, pro 100 Gew.Teile der Gesamtmenge an Komponente (A), berechnet als $R^1SiO_{1,5}$, und Komponente (E), berechnet als SiO_2 . Wenn die Menge geringer ist als 1 Gew.Teil, wird die Adhäsion des Überzugs verschlechtert oder die Viskosität der Überzugslösung wird zu niedrig, so daß der entstehende Überzug zu dünn wird und seine Beständigkeit vermindert wird. In einem solchen Fall wird das Auftreten regenbogengefärbter Streifen auf der Oberfläche des beschichteten Films beobachtet. Wenn die Menge größer ist als 60 Gew.Teile, ist die Härte des Überzugs nicht ausreichend.

Die Komponente (E) trägt, wie die Komponente (D), zu einer Erhöhung in der Adhäsion und Dauerhaftigkeit der Zusammensetzung bei.

Wenn die Menge an Siliciumkomponente in der Zusammensetzung (Komponente A oder die Gesamtsumme der Komponenten A und E, wenn letztere vorhanden ist) relativ zu der Komponente (D) oder der Komponente (F) über die angegebene Menge erhöht wird, wird der entstehende Überzug spröde und die Adhäsion wird verschlechtert. Wenn die Menge an Siliciumverbindung geringer ist als dem angegebenen Bereich entspricht, werden die Härte und Abriebsbeständigkeit des entstehenden Überzugs verschlechtert.

Die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen, die das Organotrialkoxysilan-hydrolysat [Komponente(A)], das Härtungsmittel [Komponente(C)], das Aminoharz [Komponente(D)] und das Lösungsmittel [Komponente(B)] enthalten, können als Komponente (G) ein Mittel, das ultraviolette Strahlen absorbiert, enthalten.

Beispiele geeigneter ultraviolett-absorbierender Mittel, die bei der vorliegenden Erfindung verwendet werden können, sind Phenylsalicylate wie Phenylsalicylat, para-t-Butylphenylsalicylat oder para-Octylphenylsalicylat; Hydroxybenzophenone wie 2,4-Dihydroxybenzophenon, 2-Hydroxy-4-methoxybenzophenon, 2-Hydroxy-4-octoxybenzophenon, 2,2'-Dihydroxy-4-methoxybenzophenon oder 2-Hydroxy-4-chlorbenzophenon, und Hydroxybenzotriazole wie 2-(2'-Hydroxy-5-methoxyphenyl)-benzotriazol oder 2-(2'-Hydroxy-5-octoxyphenyl)-benzotriazol. Diese ultraviolett-absorbierenden Verbindungen können allein oder in Mischungen verwendet werden.

Die Menge an Ultraviolett-Absorptionsmittel beträgt 2 bis 60 Gew.Teile, bevorzugt 5 bis 30 Gew.Teile, pro 100 Gew.Teile des hydrolysierten Produkts von Organotrialkoxysilan (A), berechnet als $R^1SiO_{1,5}$, oder 100 Gew.Teile der Gesamtmenge an Organotrialkoxysilan (A), berechnet als $R^1SiO_{1,5}$, und dem hydrolysierten Produkt des Kieselsäureesters (E), berechnet als SiO_2 , wenn das letztere verwendet wird. Wenn die Menge an Ultraviolett-Absorptionsmittel geringer ist als 2 Gew.Teile, besitzt der erhaltene Überzug eine nicht ausreichende Beständigkeit gegenüber Gelbwerden und eine niedrige Wetterbeständigkeitsadhäsion. Wenn die Menge größer ist als 6,0 Gew.Teile, wird der Überzug manchmal weiß und verliert seine Transparenz.

Das Ultraviolett-Absorptionsmittel trägt zur Verbesserung der Verfärbungsbeständigkeit und Wetterbeständigkeitsadhäsion der erfindungsgemäßen Zusammensetzungen bei. Zusätzlich wurde überraschenderweise gefunden, daß bei der vorliegenden Erfindung das Ultraviolett-Absorptionsmittel die Adhäsion der erfindungsgemäßen Zusammensetzungen selbst verbessert.

509810/1099

Das Ultraviolett-Absorptionsmittel ist gleich gut wirksam bei den erfindungsgemäßen Zusammensetzungen, die eine zusätzliche Komponente (E) oder (F) wie oben erwähnt enthalten.

Die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen können leicht hergestellt werden, indem man die obigen Bestandteile einfach vermischt. Die Zugabe der Bestandteile kann beliebig gewählt werden.

Bevorzugt beträgt, wie zuvor angegeben, die Konzentration der Feststoffe in den erfindungsgemäßen Zusammensetzungen 5 bis 40 Gew. %.

Das Beschichten der Oberfläche eines Formkörpers aus einem Polymeren mit den obigen Zusammensetzungen kann beispielsweise durchgeführt werden, indem man den Formkörper in die Zusammensetzung eintaucht oder indem man die Zusammensetzung auf den Formkörper durch Beschichten mit Bürsten, Sprühbeschichten, Fließbeschichten usw. aufbringt und den Überzug dann in der Luft trocknet und in der Wärme härtet. Wünschenswerterweise wird das Härten in der Wärme während mindestens 1 Minute bei einer Temperatur im Bereich von 60 bis 200°C durchgeführt. Wenn beispielsweise ein Infrarot-Erwärmer verwendet wird, so kann das Härten in der Wärme innerhalb kurzer Zeit beendet sein. Wenn beispielsweise ein Polycarbonat-Formkörper verwendet wird und das Wärmehärten bei 130°C durchgeführt wird, so ist eine Zeit von 10 bis 60 Minuten erforderlich.

Entsprechend dem obigen Verfahren kann man Formkörper, die mit den erfindungsgemäßen Überzugsmassen in einer Dicke von 2 bis 50 Mikron beschichtet sind, herstellen. Die erhaltenen, beschichteten Formkörper besitzen, verglichen mit den nichtbeschichteten Formkörpern, eine überlegene Oberflächenhärte und außerdem sind verschiedene Oberflächeneigenschaften der Formkörper wesentlich verbessert. Wird beispielsweise eine Polycarbonat-Platte, die nicht mit den erfindungsgemäßen Überzugsmassen beschichtet ist, als Ersatz für Fensterglas verwendet, treten beispielsweise die folgenden Schwierigkeiten auf:

(a) Wenn es stark mit einem Fingernagel gerieben wird, wird es leicht beschädigt;

(b) es sammelt Staub an, und wenn dieser abgewischt wird, können Beschädigungen auftreten;

(c) wenn es in Berührung mit verschiedenen Arten von organischen Lösungsmitteln kommt wie mit Chlor enthaltenden Verbindungen, einem Keton, einem Ester, einer aromatischen Verbindung oder einem Äther, verliert es seine Transparenz und erleidet Lösungsmittelrisse, die sein Aussehen verschlechtern;

(d) wenn es ultravioletter Strahlung während längerer Zeiten ausgesetzt ist, wird die Oberfläche gelb.

Wenn andererseits eine Polycarbonat-Platte, die mit der erfindungsgemäßen Überzugszusammensetzung beschichtet ist, verwendet wird, so ist diese so hart, daß sie durch Fingernägel nicht beschädigt wird, sie ist transparent und besitzt einen schönen Glanz. Sie zeigt weiterhin eine gute Schlüpfrigkeit, zieht keinen Staub an, bedingt durch gute antistatische Eigenschaften. Sie besitzt außerdem eine verbesserte Beständigkeit gegenüber Lösungsmitteln, die einen Verlust der Transparenz der Polycarbonat-Platte verursachen können.

Die erfindungsgemäßen Massen zeigen überlegene Eigenschaften wie Adhäsion, Härte und Beständigkeit gegenüber Gelbwerden nach dem Bewitterungsversuch während einer Zeit, die länger ist als ein Jahr.

Die Formkörper, auf die die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen hauptsächlich aufgebracht werden, sind Formkörper aus Polycarbonat. Sie können jedoch auch auf Formkörper aus anderen thermoplastischen Harzen oder wärmehärtbaren Harzen wie Polymethylmethacrylat-, Polyester-, Polyamid-, Vinylchlorid-, Polystyrol-, ABS-, Acetat-, ungesättigte Polyester- und Diallylharze aufgebracht werden. Die Formkörper können beispielsweise in Form von Filmen, Bahnen, Folien, spritzguß-verformten Gegenständen, im Vakuum verformten Gegenständen oder ge-

509810/1099

gossenen Gegenständen vorliegen.

Die beschichteten Gegenstände können beispielsweise als verschiedene Harzlinsen oder Fenstergläser von Automobilen, Flugzeugen oder Schulgebäuden, als Sicherheitsglas usw. verwendet werden.

Da die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen gegenüber Poly-carbonat- und Polymethylmethacrylatharzen eine besonders gute Adhäsion zeigen, besitzen sie den Vorteil, daß eine Unterbeschichtung bei der Anwendung dieser Harze nicht erforderlich ist.

Die erfindungsgemäßen Massen können ebenfalls geringe Mengen anderer Zusatzstoffe wie Farbstoffe, Pigmente, Härtingsaktivatoren wie Dibutylzinnlaurat, Füllstoffe oder Viskositätsverbesserer bzw. -einstellmittel enthalten.

Die Herstellung der erfindungsgemäßen Überzugsmassen und ihre Wirkungen werden in den folgenden Beispielen näher erläutert. Diese Beispiele sollen die vorliegende Erfindung nicht beschränken.

In den Beispielen sind alle Teile durch das Gewicht ausgedrückt. Die Bewertungen der Oberflächenhärte, Adhäsion und Wetterbeständigkeit erfolgten nach den folgenden Verfahren.

Oberflächenhärte

Der Unterschied in dem Trübungswert der Probe vor und nach einem Sand-Falltest wird bestimmt. Der Sand-Falltest wird entsprechend dem ASTM-673-44-Verfahren durchgeführt. 800 g Carborundum (Nr.80) werden von einer Höhe von 635 mm auf eine rotierende Platte, die mit einem Winkel von 45° gehalten wird, fallengelassen. Der Trübungswert wird auf Grundlage der folgenden Gleichung berechnet:

$$\text{Trübungswert(\%)} = \frac{(T_d - \frac{T_t \times T_f}{100})}{T_t} \times 100$$

worin T_t die Gesamtmenge an durchgelassenem Licht, T_d die Menge an diffundiertem Licht und T_f die mechanische Korrektur bedeuten.

Adhäsion

Die Bewertung der Adhäsion erfolgt entsprechend dem Bandversuch mit einem Kreuzschnitt. Elf geradlinige Verletzungen wurden transversal und longitudinal in Intervallen von 1mm auf eine beschichtete Oberfläche mit einer Fläche von 1 cm² aufgebracht. Ein druckempfindliches Klebeband (Sekisui Cellotape, ein druckempfindliches Klebeband mit einer Breite von 18 cm, ein Produkt von Sekisui Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha, Japan) wird fest auf die verletzte Oberfläche geklebt und dann schnell abgezogen. Das Ausmaß des Abschälens der beschichteten Schicht wird bestimmt durch

$$\frac{\text{Anzahl der Quadrate, die auf der Oberfläche unabgeschält verbleiben}}{100}$$

Bewitterung

Die Bewitterung wird 400 Stunden und 800 Stunden bei einer Oberflächentemperatur von 63°C und einer Feuchtigkeit von 68% unter Verwendung eines Sunshine Weather-O-Meters (WE-SUN-DZ-Typ, Produkt der Toyo Rika Kogyo Kabushiki Kaisha) bestimmt.

B e i s p i e l 1

Die folgenden drei Lösungen werden in der Reihenfolge (1) bis (3) vermischt.

(1) Eine Lösung, die man erhält, indem man 200 Teile Methyltrimethoxysilan und 70 Teile 0,02n Chlorwasserstoffsäure zu 250 Teilen Isopropanol gibt und die Mischung unter Rühren bei 30° ± 5°C 60 Minuten erwärmt.

(2) 200 Teile U-VAN 20-SA (eine 50%ige Butanol/Xylol-Lösung aus butyliertem methyloliertem Melamin, ein Produkt der Mitsui Toatsu Kabushiki Kaisha).

(3) Eine Lösung, die man erhält, indem man 2 Teile Chlorwasserstoffsäure zu 250 Teilen Isobutanol gibt.

Eine Mischung aus (1), (2) und (3) wird 2 Tage gealtert und dann wird damit eine 2 mm dicke Polycarbonat-Platte (PANLITE, eingetragenes Warenzeichen der Teijin Chemicals, Ltd.) beschichtet. Man trocknet dann in Luft und erwärmt während 60 Minuten bei 130°C. Die Dicke des Überzugs beträgt 6,3 Mikron. Die entstehende beschichtete Polycarbonat-Platte ist glatt und transparent und sie wird nicht beschädigt, wenn sie stark mit einem Fingernagel gerieben wird. Ein Sand-Falltest auf die beschichtete Polycarbonat-Platte zeigt, daß eine Erhöhung im Trübungswert von nur 6,0% beobachtet wird. Andererseits zeigt die nichtbeschichtete Polycarbonat-Platte eine Erhöhung von 68,4% im Trübungswert bei dem gleichen Sand-Falltest. Die Adhäsion beträgt, bewertet mit dem Kreuzschnitt-Bandtest, 100/100, was überhaupt kein Abschälen anzeigt. Wird sie jeweils 30 Minuten in Methylenchlorid, Methyläthylketon, Äthylacetat, Xylol und Dioxan eingetaucht, so wird im Aussehen keine Abnormalität beobachtet.

Wird die beschichtete Polycarbonat-Platte dem Sand-Falltest unterworfen, nachdem sie in Wasser während 3 Tagen eingetaucht wurde, zeigt sie einen Trübungswert von 6,2% und im Aussehen beobachtet man keine Änderungen. Die Wetterstabilität der beschichteten Polycarbonat-Platte wurde 400 Stunden unter Verwendung eines Sun Shine Weather-0-Meters untersucht und man beobachtete keine Änderungen im Aussehen. Nach dem Sand-Falltest betrug der Trübungswert 12,1% und die Adhäsion 100/100, was keine Verminderung in der Adhäsion anzeigt. Nach dem Bewitterungstest während 800 Stunden war der Trübungswert nur 19,2 und die Adhäsion betrug 84/100.

Beispiele 2 und 3 und Vergleichsbeispiele 1 und 2

Eine Polycarbonat-Platte wurde auf gleiche Weise wie in Beispiel 1 beschrieben beschichtet, mit der Ausnahme, daß die Anteile an Methyltrimethoxysilan und an veräthertem Methylolmelamin wie in Tabelle I gezeigt geändert wurden. Die Härte und Adhäsion der beschichteten Polycarbonat-Platten vor und nach dem Bewitterungstest wurden geprüft und die Ergebnisse sind in Tabelle I aufgeführt.

509810/1099

Tabelle I

| Ver- such Nr. | Menge an Methyltri- methoxy- silan (Teile) | Menge an veräthert. Methylol- melamin (Teile) | Gew. Verhältnis $\text{CH}_3\text{SiO}_{1,5}/\text{ver-}$ äthert. Methylol- melamin | Vor dem Be- witterungs- test | | Nach d. Be- witterungstest währ. 400 Std. | | Nach d. Bewitte- rungstest während 800 Std. | |
|---------------------|--|---|--|------------------------------------|---------------|---|---------------|---|---------------|
| | | | | Härte | Ad- häsion | Härte | Ad- häsion | Härte | Ad- häsion |
| Vgl. B.1 | 200 | 0 | 100/0 | 38,5 | 0/100 | 58,3 | 0/100 | - | - |
| Beisp. 2 | 120 | 60 | 100/50 | 5,4 | 100/100 | 10,7 | 100/100 | 18,9 | 82/100 |
| " 3 | 60 | 120 | 100/200 | 7,6 | 100/100 | 15,6 | 100/100 | 19,5 | 83/100 |
| Vgl. B.2 | 0 | 200 | 0/100 | 19,3 | 100/100 | 29,4 | 0/100 | 32,9 | 0/100 |

Beispiele 4 bis 8

Eine Beschichtungsmasse wurde auf gleiche Weise wie in Beispiel 1 beschrieben hergestellt, mit der Ausnahme, daß die jeweiligen, in Tabelle II aufgeführten Organotrialkoxysilane anstelle von Methyltrimethoxysilan verwendet wurden. Die entstehenden Beschichtungsmassen wurden auf eine Polycarbonat-Platte mit einer Dicke von 2 mm aufgebracht. Die entstehenden beschichteten Polycarbonat-Platten waren glatt, transparent und hart, und wurden sie 30 Minuten in die Lösungsmittel eingetaucht, die in Beispiel 1 aufgeführt sind, so wurden keine Änderungen im Aussehen beobachtet. Die Härte und Adhäsion jeder dieser beschichteten Platten vor und nach dem Bewittungstest wurden untersucht und die Ergebnisse sind in Tabelle II aufgeführt.

Tabelle II

| Bei- spiel Nr. | <u>Organotrialkoxy- silane</u> | | <u>Vor dem Bewitt.Test</u> | | <u>Nach dem Bewitt.Test⁺</u> | | <u>Nach dem Be- witt.Test währ.800Std.</u> | |
|----------------------|---|--------------|--------------------------------|---------------|---|---------------|--|---------------|
| | Art | Menge(Teile) | Härte | Ad- häsion | Härte | Ad- häsion | Härte | Ad- häsion |
| 4 | Äthyltriäth- oxysilan | 240 | 5,7 | 100/100 | 12,9 | 100/100 | 18,3 | 86/100 |
| 5 | Methyltribut- oxysilan | 358 | 7,0 | 100/100 | 15,2 | 100/100 | 19,7 | 89/100 |
| 6 | Vinyltriäth- oxysilan | 244 | 7,3 | 100/100 | 11,0 | 100/100 | 19,2 | 85/100 |
| 7 | Phenyltriäth- oxysilan | 185 | 8,3 | 100/100 | 14,5 | 100/100 | 20,8 | 79/100 |
| 8 | Methyltrimeth- oxysilan Tetraäthoxy- silan | 200 23 | 5,9 | 100/100 | 12,7 | 100/100 | 16,4 | 70/100 |

+ während 400 Std.

Beispiele 9 bis 11

Eine Überzugsmasse wurde unter den gleichen Bedingungen wie in Beispiel 1 beschrieben hergestellt, mit der Ausnahme, daß die jeweiligen Verbindungen, die in Tabelle III aufgeführt sind, anstelle von Chlorwasserstoffsäure als Härtungskatalysatorkomponente verwendet wurden. Die entstehenden Überzugsmassen wurden auf eine Polycarbonat-Platte mit einer Dicke von 2 mm

aufgebracht. Alle entstehenden beschichteten Polycarbonat-Platten waren glatt, transparent und hart und selbst wenn sie während 30 Minuten in die jeweiligen, in Beispiel 1 aufgeführten Lösungsmittel eingetaucht wurden, beobachtete man keine Änderung in dem Aussehen. Die Härte und Adhäsion von jeder dieser Platten wurden vor und nach dem Bewitterungstest geprüft und die erhaltenen Ergebnisse sind in Tabelle III aufgeführt.

Tabelle III

| Bei- spiel Nr. | Härtungskatalysator Art | Menge(Teile) | vor dem | | nach dem | | nach dem | |
|----------------------|----------------------------|--------------|-------------|---------------|-----------------------|---------------|---------------------|-------------|
| | | | Bewitt.Test | | Bewitt.Test | | Bewitt.Test | |
| | | | Härte | Ad- häsion | währ.400Std. Härte | Ad- häsion | währ.800 h Härte | Ad- häs. |
| 9 | p-Toluolsul- fonsäure | 2,0 | 5,6 | 100/100 | 11,5 | 100/100 | 19,0 | 88/100 |
| 10 | Zinkoctenat | 5,0 | 7,1 | 100/100 | 14,3 | 100/100 | 21,3 | 85/100 |
| 11 | Zinkacetyl- acetonat | 2,0 | 7,9 | 100/100 | 15,2 | 100/100 | 22,2 | 82/100 |

Beispiele 12 bis 14

Verschiedene Kunststoff-Formgegenstände wurden mit den gleichen Zusammensetzungen, wie sie in Beispiel 1 beschrieben wurden, durch Eintauchverfahren beschichtet und in der Luft getrocknet und in der Wärme unter den gleichen Bedingungen, wie sie in Tabelle IV angegeben sind, gehärtet. Alle beschichteten Harzfolien(oder -filme) waren glatt, transparent und hart. Die Härte der Harzfolien (oder -filme) vor und nach dem Beschichten wurde bestimmt und die Ergebnisse sind in Tabelle IV aufgeführt.

Tabelle IV

| Bei- spiel Nr. | Beschichtete Form- gegenstände | Härtungs- bedingungen | | Nach dem Beschichten | | Vor dem Be- schichten |
|----------------------|-----------------------------------|--------------------------|----------------|-------------------------|---------------|--------------------------|
| | | Temp. (°C) | Zeit (Min.) | Härte | Ad- häsion | Härte |
| 1 | Polycarbonatplatte | 130 | 60 | 6,0 | 100/100 | 68,4 |
| 12 | Polyäthylen-2,6- naphthalat | 150 | 10 | 4,7 | 100/100 | 71,8 |
| 13 | Polyäthylentere- phthalatfilm | 150 | 10 | 4,8 | 100/100 | 74,3 |
| 14 | CR-39-Folie ⁺ | 140 | 20 | 4,9 | 100/100 | 5,5 |

⁺ Diäthylenglykol-diallylcarbonat-polymer

Die Härte und Adhäsion von jeder dieser beschichteten Platten wurden vor und nach dem Bewitterungstest untersucht. Die erhaltenen Ergebnisse sind in Tabelle V angegeben.

Tabelle V

| Bei- spiel Nr. | Vor dem Bewitt. Test | | Nach dem Bewitt. Test | | Nach dem Bewitt. Test | |
|----------------------|----------------------|----------|-----------------------|----------|-----------------------|----------|
| | Härte | Adhäsion | währ. 400 h | Adhäsion | während 800 h | Adhäsion |
| 1 | 6,0 | 100/100 | 12,1 | 100/100 | 19,2 | 84/100 |
| 12 | 4,7 | 100/100 | 8,9 | 100/100 | 15,9 | 86/100 |
| 13 | 4,8 | 100/100 | 8,9 | 100/100 | 16,3 | 90/100 |
| 14 | 4,9 | 100/100 | 9,2 | 100/100 | 15,4 | 100/100 |

Beispiel 15

Eine Überzugszusammensetzung wurde auf gleiche Weise wie in Beispiel 1 beschrieben hergestellt, mit der Ausnahme, daß 30 Teile Tetraäthoxysilan zu der Lösung (1) gegeben wurden. Die entstehende Überzugslösung wurde auf eine Polycarbonat-Platte aufgebracht und in der Wärme auf gleiche Weise wie in Beispiel 1 beschrieben gehärtet. Die beschichtete Polycarbonat-Platte wurde in Wasser während 3 Tagen eingetaucht und dann dem Sand-Falltest unterworfen. Sie zeigte einen Trübungswert von 5,2% und im Aussehen wurde keine Änderung beobachtet. Die Adhäsion der beschichteten Platte betrug 100/100.

Andererseits hatte die beschichtete Platte nach dem Bewitterungstest während 400 Stunden eine Härte von 10,9% und eine Adhäsion von 100/100. Nach dem Bewitterungstest während 800 Stunden betrug die Härte 15,1% und die Adhäsion 73/100.

B e i s p i e l 16

Die folgenden drei Lösungen werden in der Reihenfolge (1) bis (3) vermischt.

(1) Eine Lösung, die man erhält, indem man 186 Teile Methyltrimethoxysilan, 31,5 Teile Äthylsilikat und 70 Teile 0,02n Chlorwasserstoffsäure zu 338 Teilen Isopropanol zufügt und die Mischung auf $30^{\circ} \pm 5^{\circ}\text{C}$ während 60 Minuten unter Rühren erwärmt.

(2) 200 Teile U-VAN 20-SA (ein Produkt der Mitsui Toatsu Kabushiki Kaisha, eine 50% Butanol/Xylol-Lösung von butyliertem Methylolmelamin).

(3) Eine Lösung, die man erhält, indem man 4 Teile Chlorwasserstoffsäure in 130 Teilen Isobutanol löst.

Die entstehende Lösungsmittelmischung wird 2 Tage gealtert und dann wird eine 2 mm dicke Polycarbonat-Platte eingetaucht. Nach dem Trocknen in Luft während 60 Minuten wird die beschichtete Platte 60 Minuten bei 130°C in der Wärme gehärtet. Die Dicke des Überzugs beträgt 5,8 Mikron. Die entstehende beschichtete Polycarbonat-Platte wird auf ihre Härte und Adhäsion vor dem Bewitterungsversuch und nach dem Bewitterungstest während 400 und 800 Stunden geprüft. Die erhaltenen Ergebnisse sind in Tabelle VI angegeben.

Tabelle VI

| | <u>Härte</u> | <u>Adhäsion</u> |
|---------------------------------------|--------------|-----------------|
| vor dem Bewitterungstest | 6,1 | 100/100 |
| nach dem Bewitt.Test während 400 Std. | 10,4 | 96/100 |
| nach dem Bewitt.Test während 800 Std. | 14,9 | 67/100 |

Beispiel 17

Die folgenden drei Lösungen werden in der Reihenfolge (1) bis (3) vermischt.

(1) Eine Lösung, die man erhält, indem man 13,8 Teile Äthylsilikat, 11,8 Teile Methyltriäthoxysilan und 0,5 Teile 4/30n Chlorwasserstoffsäure zu 33,8 Teilen Isopropanol gibt und die Mischung bei Zimmertemperatur 3 Tage altert.

(2) Eine Lösung, die man erhält, indem man 4,0 Teile S-LEC BL-3 (ein Polyvinylbutyralharz, ein Produkt von Sekisui Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha) in 40,0 Teilen Isobutanol löst.

(3) 19,5 Teile U-VAN 20-SA (eine 50%ige Butanol/Xylollösung von butyliertem Methylolmelamin, ein Produkt von Mitsui Toatsu Kabushiki Kaisha).

Die entstehende Lösungsmittelmischung wird auf eine 2 mm dicke Polycarbonatharz-Platte aufgebracht und nach dem Trocknen in Luft in der Wärme bei 130°C während 60 Minuten gehärtet. Die Dicke des Überzugs beträgt 8,6 Mikron. Die entstehende beschichtete Harzplatte ist glatt und transparent und bei dem Sand-Fallversuch findet man eine Erhöhung von 6,8% im Trübungswert.

Bei dem Kreuzschnitt-Bandversuch beobachtet man kein Abschälen. Die beschichtete Platte wird durch Äthylacetat, Methyläthylketon und Xylol nicht angegriffen.

Wird die beschichtete Harzplatte in Wasser während 3 Tagen eingetaucht, beobachtet man eine Erhöhung von 6,9% im Trübungswert und der Trübungswert ändert sich kaum von dem vor dem Eintauchen.

Die Härte und Adhäsion der Polycarbonatharz-Platte wurde vor dem Bewitterungstest und nach dem Bewitterungstest während 400 Stunden und 800 Stunden geprüft. Die erhaltenen Ergebnisse sind in der Tabelle VII aufgeführt.

Tabelle VII

| | <u>Härte</u> | <u>Adhäsion</u> |
|--|--------------|-----------------|
| vor dem Bewitterungstest | 6,8 | 100/100 |
| nach dem Bewitterungstest während 400 Std. | 11,8 | 100/100 |
| nach dem Bewitterungstest während 800 Std. | 11,5 | 82/100 |

B e i s p i e l 18

Beispiel 17 wurde wiederholt, mit der Ausnahme, daß die Mengen der Lösungen (1), (2) und (3) zu 35 Teilen, 8 Teilen bzw. 8 Teilen geändert wurden. Die Erhöhung im Trübungswert vor dem Eintauchen in Wasser während 3 Tagen betrug 5,5% und nach dem Eintauchen betrug die Erhöhung im Trübungswert 5,8%.

Die Härte und Adhäsion der beschichteten Harzplatte wurden vor und nach dem Bewitterungstest bestimmt. Die Ergebnisse sind in Tabelle VIII aufgeführt.

Tabelle VIII

| | <u>Härte</u> | <u>Adhäsion</u> |
|--|--------------|-----------------|
| vor dem Bewitterungstest | 5,5 | 100/100 |
| nach dem Bewitterungstest während 400 Std. | 10,4 | 100/100 |
| nach dem Bewitterungstest während 800 Std. | 11,4 | 64/100 |

B e i s p i e l 19

Die folgenden vier Lösungen (1) bis (4) wurden in der Reihenfolge (1) bis (4) vermischt.

(1) Eine Lösung, die man erhält, indem man 162 Teile Methyltrimethoxysilan, 70 Teile Äthylsilikat und 70 Teile 0,02n Chlorwasserstoffsäure zu 338 Teilen Isopropanol zufügt und die Mischung bei $30 \pm 5^{\circ}\text{C}$ während 60 Minuten unter Rühren erwärmt.

(2) 200 Teile U-VAN 20-SA (eine 50%ige Butanol/Xylol-lösung aus butyliertem Methylolmelamin, ein Produkt der Mitsui Toatsu K.K.).

(3) Eine Lösung, die man erhält, indem man 12 Teile S-LEC BL-3 (ein Polyvinylbutyralharz, ein Produkt der Sekisui Kagaku Kogyo K.K.) in 120 Teilen Isobutanol löst.

(4) Eine Lösung, die man erhält, indem man 4 Teile Chlorwasserstoffsäure in 130 Teilen Isobutanol löst.

Die entstehende Lösungsmittelmischung wird 2 Tage gealtert und eine 2 mm dicke Polycarbonat-Platte wird darin eingetaucht. Nach dem Trocknen in Luft während 60 Minuten wird die beschichtete Platte bei 130°C 60 Minuten in der Wärme gehärtet. Die Dicke des Überzugs beträgt 8,3 Mikron. Die entstehende beschichtete Polycarbonat-Platte ist glatt und transparent und wird nicht beschädigt, selbst wenn man sie stark mit einem Fingernagel kratzt.

Bei dem Sand-Falltest zeigt die beschichtete Polycarbonatplatte nur eine Erhöhung von 5,9% im Trübungswert. Bei dem Kreuzschnitt-Bandtest beobachtet man kein Abschälen. Wird diese beschichtete Polycarbonatplatte 30 Minuten in Methylenchlorid, Methyläthylketon, Äthylacetat, Xylol und Dioxan eingetaucht, so beobachtet man keine Änderung im Aussehen.

Wird die beschichtete Platte dem Sand-Falltest nach dem Eintauchen in Wasser bei Zimmertemperatur während 3 Tagen unterworfen, so zeigt sie einen Trübungswert von 5,9% und man beobachtet keine Änderung im Aussehen noch eine Verminderung in der Adhäsion.

Die beschichtete Polycarbonatplatte wird dem Bewitterungstest bei 400 und 800 Stunden unter Verwendung eines Sunshine Weather-O-Meters unterworfen und dann dem Sand-Falltest unterworfen. Die beschichtete Platte zeigt einen Trübungswert von 11,4% und 11,0% nach dem Bewitterungsversuch während 400 und 800 Stunden. Die Adhäsion beträgt 100/100 und 82/100 nach dem Bewitterungstest während 400 Std. bzw. 800 Std. In jedem Fall wird keine Änderung im Aussehen beobachtet.

B e i s p i e l 20

Die folgenden vier Lösungen (1) bis (4) werden in der Reihenfolge (1) bis (4) vermischt.

(1) Eine Lösung, die man erhält, indem man 186 Teile Methyltrimethoxysilan, 31,5 Teile Äthylsilikat und 70 Teile 0,02n Chlorwasserstoffsäure zu 338 Teilen Isopropanol zugibt und die Mischung bei $30^{\circ} \pm 5^{\circ}\text{C}$ während 60 Minuten unter Rühren erwärmt.

(2) 200 Teile U-VAN 20-SA (eine 50%ige Butanol/Xylol-Lösung von butyliertem Methylolmelamin, ein Produkt der Mitsui Toatsu K.K.).

(3) Eine Lösung, die man erhält, indem man 36 Teile S-LEC BL-3 (ein Polyvinylbutyralharz, ein Produkt der Sekisui Kagaku Kogyo K.K.) in 120 Teilen Isobutanol löst.

(4) Eine Lösung, die man erhält, indem man 4 Teile Chlorwasserstoffsäure in 130 Teilen Isobutanol löst.

Die Lösungsmittelmischung wird 2 Tage gealtert und eine 2 mm dicke Polycarbonatplatte wird darin eingetaucht. Nach dem Trocknen in Luft während 60 Minuten wird sie während 60 Minuten bei 130°C in der Wärme gehärtet. Der erhaltene Überzug besitzt eine Dicke von 10,2 Mikron. Die entstehende beschichtete Polycarbonatplatte ist glatt, transparent und hart. Wird sie dem Bewitterungstest und dem Wasserbeständigkeitsversuch unterworfen oder in die in Beispiel 19 aufgeführten Lösungsmittel eingetaucht, so tritt im Aussehen keine Änderung auf und die Adhäsion wird nicht verschlechtert. Die Härte und Adhäsion der beschichteten Platte vor und nach dem Bewitterungstest sind in Tabelle IX aufgeführt.

Tabelle IX

| | <u>Härte</u> | <u>Adhäsion</u> |
|--|--------------|-----------------|
| vor dem Bewitterungstest | 9,5 | 100/100 |
| nach dem Bewitterungstest während 400 Std. | 17,0 | 100/100 |
| nach dem Bewitterungstest während 800 Std. | 14,8 | 88/100 |

B e i s p i e l 21

Die folgenden vier Lösungen werden in der Reihenfolge (1) bis (4) vermischt.

(1) Eine Lösung, die man erhält, indem man 186 Teile Methyltrimethoxysilan, 31,5 Teile Äthylsilikat und 70 Teile 0,02n Chlorwasserstoffsäure zu 338 Teilen Isopropanol zugibt und die Mischung bei $30 \pm 5^{\circ}\text{C}$ während 60 Minuten unter Rühren erwärmt.

(2) 200 Teile U-VAN 20-SA (eine 50%ige Butanol/Xylol-Lösung von butyliertem Methylolmelamin, ein Produkt der Mitsui Toatsu K.K.).

(3) Eine Lösung, die man erhält, indem man 12,5 Teile S-LEC BL-3 (ein Polyvinylbutyralharz, ein Produkt der Sekisui Kagaku Kogyo K.K.) in 120 Teilen Isobutanol löst.

(4) Eine Lösung, die man erhält, indem man 5 Teile Natriumacetat in 50 Teilen Essigsäure löst.

Die Lösungsmittelmischung wird 2 Tage gealtert und eine 2 mm dicke Polycarbonatplatte wird darin eingetaucht. Nach dem Trocknen in Luft während 60 Minuten wird sie bei 130°C 60 Minuten in der Wärme gehärtet. Die Dicke des Überzugs beträgt 7,9 Mikron. Die beschichtete Polycarbonatplatte ist glatt, transparent und hart und wird sie dem Bewitterungstest und dem Wasserbeständigkeitstest unterworfen oder 30 Minuten in die in Beispiel 19 aufgeführten Lösungsmittel eingetaucht. so zeigt die Platte keine Änderung im Aussehen noch eine Verminderung in der Adhäsion. Die Härte und Adhäsion der beschichteten Platte vor und nach dem Bewitterungstest sind in Tabelle X aufgeführt.

Tabelle X

| | <u>Härte</u> | <u>Adhäsion</u> |
|--|--------------|-----------------|
| vor dem Bewitterungstest | 5,6 | 100/100 |
| nach dem Bewitterungstest während 400 Std. | 10,3 | 100/100 |
| nach dem Bewitterungstest während 800 Std. | 9,4 | 74/100 |

Beispiele 22 bis 26

Eine Überzugsmasse wurde auf gleiche Weise wie in Beispiel 21 beschrieben hergestellt, mit der Ausnahme, daß die Arten von Organotrialkoxysilan und dem Silikat wie in Tabelle XI aufgeführt geändert wurden, und daß eine Lösung von 40 Teilen Chlor-

wasserstoffsäure in 130 Teilen Isobutanol als Katalysator verwendet wurden. Die entstehenden Überzugsmassen wurden auf eine 2 mm dicke Polycarbonatplatte auf gleiche Weise wie in Beispiel 21 beschrieben aufgebracht. Die entstehende beschichtete Platte war glatt, transparent und hart und wurde sie dem Bewitterungstest und dem Wasserbeständigkeitstest unterworfen, oder 30 Minuten in die in Beispiel 21 aufgeführten Lösungsmittel eingetaucht, so trat im Aussehen keine Änderung auf und die Adhäsion wurde nicht verschlechtert. Die Härte und Adhäsion der beschichteten Platte vor und nach dem Bewitterungstest sind in Tabelle XI aufgeführt.

Tabelle XI

| Bei- spiel Nr. | Organotrialkoxysilan Art | Menge(Teile) | Silikat- Art | Menge(Teile) | vor dem Be- mitt. Test Härte | Ad- häsion | nach dem Bewitt. test währ. 400 h Härte | Adhäsion | nach dem Bewitt. Test währ. 800 h Härte | Adhäsion |
|----------------------|--|--------------|--------------------------------------|--------------|------------------------------------|---------------|---|----------|---|----------|
| 22 | $\text{CH}_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$ | 186 | $\text{Si}(\text{OC}_4\text{H}_9)_4$ | 65,5 | 6,0 | 100/100 | 11,1 | 100/100 | 10,9 | 81/100 |
| 23 | $\text{C}_2\text{H}_5\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_3$ | 216 | $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$ | 31,5 | 5,8 | 100/100 | 11,9 | 100/100 | 11,4 | 76/100 |
| 24 | $\text{CH}_3\text{Si}(\text{OC}_4\text{H}_9)_3$ | 220 | $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$ | 31,5 | 6,3 | 100/100 | 13,2 | 100/100 | 13,4 | 89/100 |
| 25 | $\text{CH}_2=\text{CHSi}(\text{OC}_2\text{H}_5)_3$ | 220 | $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$ | 31,5 | 6,6 | 100/100 | 11,0 | 100/100 | 11,7 | 83/100 |
| 26 | $\text{C}_6\text{H}_5\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_3$ | 167 | $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$ | 31,5 | 7,3 | 100/100 | 13,3 | 100/100 | 12,0 | 92/100 |

Beispiele 27 bis 30

Eine Beschichtungsmasse wurde auf gleiche Weise wie in Beispiel 21 beschrieben hergestellt, mit der Ausnahme, daß eine Lösung aus 40 Teilen Chlorwasserstoffsäure in 130 Teilen Isobutanol anstelle der Essigsäurelösung von Natriumacetat [Lösung (4)] verwendet wurde. Jeder der Kunststoff-Formkörper, die in Tabelle XII aufgeführt sind, wurde in die Überzugszusammensetzung eingetaucht und unter den in Tabelle XII aufgeführten Bedingungen in der Wärme gehärtet. Alle beschichteten Bahnen(oder Filme)waren glatt, transparent und hart. Die Unterschiede in der Härte der Platten (oder Filme) vor und nach der Beschichtungsbehandlung sind in Tabelle XII aufgeführt.

Tabelle XII

| Beispiel Nr. | Beschichtete Kunststoff- Formkörper | Härtungsbedin- gungen | | Härte | | Ad- häsion |
|-----------------|---|--------------------------|----------------|------------------------|--------------------------|---------------|
| | | Temp. (°C) | Zeit (Min.) | vor d. Be- schicht. | nach d. Beschich- ten | |
| 27 | Polycarbonatplatte | 135 | 30 | 68,9 | 5,3 | 100/100 |
| 28 | Polyäthylen-2,6-naphthalatplatte | 150 | 10 | 71,8 | 4,3 | 100/100 |
| 29 | Polyäthylenterephthalatfilm | 150 | 10 | 74,9 | 4,1 | 100/100 |
| 30 | CR-39 Platte ⁺ | 140 | 20 | 5,6 | 4,8 | 100/100 |

⁺ Diäthylenglykol-diallylcarbonatpolymer

Die Härte und Adhäsion von jeder dieser beschichteten Platten werden vor und nach dem Bewitterungstest geprüft und die Ergebnisse sind in Tabelle XIII aufgeführt.

Tabelle XIII

| Beispiel | vor dem Bewitt. Test | | nach dem Bewitt. Test | | nach dem Bewitt. Test | |
|----------|----------------------|----------|-----------------------|----------|-----------------------|----------|
| | Härte | Adhäsion | während 400 Std. | Adhäsion | Test währ. 800 Std. | Adhäsion |
| | | | Härte | | Härte | |
| 27 | 5,3 | 100/100 | 18,6 | 100/100 | 10,1 | 80/100 |
| 28 | 4,3 | 100/100 | 7,2 | 100/100 | 9,4 | 77/100 |
| 29 | 4,1 | 100/100 | 5,9 | 100/100 | 8,0 | 84/100 |
| 30 | 4,8 | 100/100 | 6,9 | 100/100 | 9,2 | 92/100 |

B e i s p i e l 31

Die folgenden drei Lösungen werden in der Reihenfolge (1) bis (3) vermischt.

(1) Eine Lösung, die man erhält, indem man 117 Teile Methyltrimethoxysilan, 137 Teile Äthylsilikat und 70 Teile 0,02n Chlorwasserstoffsäure zu 350 Teilen Isopropanol zugibt und die Mischung bei $30 \pm 5^{\circ}\text{C}$ während 60 Minuten unter Rühren erwärmt.

(2) 200 Teile U-VAN 20-SA (eine 50%ige Butanol/Xylol-Lösung von butyliertem Methylolmelamin, ein Produkt der Mitsui Toatsu K.K.).

(3) Eine Lösung, die man erhält, indem man 38 Teile S-LEC BL-3 (ein Polyvinylbutyralharz, ein Produkt der Sekisui Kagaku Kogyo K.K.) in 250 Teilen Isobutanol löst.

Zu der entstehenden Lösungsmittelmischung gibt man weiter 15 Teile Viosorb 130 (2-Hydroxy-4-octoxybenzophenon, ein Produkt der Kyodo Yakuhin Kabushiki Kaisha) und 4 Teile Chlorwasserstoffsäure und nachdem man gut gerührt hat, wird die Lösung 2 Tage gealtert. Eine 2 mm dicke Polycarbonatplatte wird in diese Lösung eingetaucht und nach dem Trocknen in Luft während 60 Minuten wird bei 130°C während 60 Minuten in der Wärme gehärtet.

Die Dicke des erhaltenen Überzugs beträgt 7,3 Mikron. Die entstehende beschichtete Polycarbonatplatte ist glatt und transparent und wird nicht beschädigt, selbst wenn sie stark mit dem Fingernagel gekratzt wird. Wird die beschichtete Platte 30 Minuten bei Zimmertemperatur in Methylenchlorid, Methyläthylketon, Äthylacetat, Xylol oder Dioxan eingetaucht, so beobachtet man im Aussehen keine Änderung. Wird sie in Wasser bei Zimmertemperatur während 3 Tagen eingetaucht, beobachtet man keine Verminderung im Trübungswert und in der Adhäsion und keine Änderung im Aussehen. Die Härte und Adhäsion der beschichteten Polycarbonatplatte vor und nach dem Bewitterungsversuch sind in Tabelle XIV aufgeführt.

Vergleichsbeispiel 3

Die gleiche Polycarbonatplatte, wie sie in Beispiel 31 verwendet wurde, wurde dem gleichen Bewitterungsversuch wie in Beispiel 31, ohne daß sie behandelt wurde, unterworfen. Die Härte der Platte vor dem und nach dem Bewitterungstest sind in Tabelle XIV aufgeführt.

Vergleichsbeispiel 4

Eine Überzugszusammensetzung wurde auf gleiche Weise wie in Beispiel 31 beschrieben hergestellt, mit der Ausnahme, daß kein 2-Hydroxy-4-octoxybenzophenon zugefügt wurde. Die entstehende Überzugszusammensetzung wurde auf eine 2 mm dicke Polycarbonatplatte auf gleiche Weise wie in Beispiel 31 beschrieben aufgebracht.

Wurde die beschichtete Polycarbonatplatte dem Lösungsmittelbeständigkeitsversuch und dem Wasserbeständigkeitsversuch auf gleiche Weise wie in Beispiel 31 beschrieben unterworfen, so beobachtete man im Aussehen keine Änderung und in der Härte und Adhäsion keine Verschlechterung. Die Ergebnisse sind in Tabelle XIV aufgeführt.

Tabelle XIV

| Beispiel Nr. | vor dem Bewitt. Test | | nach dem Bewitt. Test währ. 400 h | | nach dem Bewitt. Test währ. 800 h | |
|-----------------|-------------------------|----------|--------------------------------------|----------|--------------------------------------|----------|
| | Härte | Adhäsion | Härte | Adhäsion | Härte | Adhäsion |
| 31 | 5,0 | 100/100 | 10,1 | 100/100 | 11,9 | 100/100 |
| Vgl.B. 3 | 67,2 | - | 69,3 | - | - | - |
| " 4 | 5,2 | 100/100 | 11,2 | 48/100 | - | - |

ORIGINAL INSPECTED

Beispiele 32 bis 34

Eine Überzugszusammensetzung wurde auf gleiche Weise wie in Beispiel 31 beschrieben hergestellt, mit der Ausnahme, daß 15 Teile der in Tabelle XV aufgeführten jeweiligen Verbindungen anstelle von 2-Hydroxy-4-octoxybenzophenon als Ultraviolett-Absorptionsmittel verwendet wurden. Die entstehende Überzugszusammensetzung wurde auf eine 2 mm dicke Polycarbonatplatte auf gleiche Weise wie in Beispiel 31 beschrieben aufgebracht.

Die beschichteten Polycarbonatplatten waren alle glatt, transparent und hart und wurden sie dem gleichen Lösungsmittelbeständigkeitsversuch und dem Wasserbeständigkeitsversuch wie in Beispiel 31 unterworfen, so beobachtete man im Aussehen keine Änderungen und in der Härte und Adhäsion trat keine Verschlechterung auf. Die Härte und Adhäsion der beschichteten Platten vor und nach dem Bewitterungstest sind in Tabelle XV aufgeführt.

Tabelle XV

| Bei- spiel Nr. | UV-Absorptions- mittel | vor dem Bewitt.Test | | nach dem Be- witt.Test | | nach dem Bewitt.Test | |
|----------------------|-------------------------------------|------------------------|----------|---------------------------|----------|-------------------------|---------|
| | | Härte | Adhäsion | währ.400Std. | | währ.800 h | |
| | | | | Härte | Adhäsion | Härte | Adhäs. |
| 32 | 2-Hydroxy-4-methoxy- benzophenon | 4,8 | 100/100 | 9,4 | 100/100 | 9,6 | 100/100 |
| 33 | TUNUVIN-P ⁺ | 5,0 | 100/100 | 10,0 | 100/100 | 9,8 | 100/100 |
| 34 | Viosorb 90 ⁺⁺ | 5,3 | 100/100 | 11,2 | 100/100 | 11,3 | 100/100 |

⁺ 2-(2'-Hydroxy-5-methylphenyl)-benzotriazol, ein Produkt von Geigy

⁺⁺ p-t-Butylphenylsalicylat, ein Produkt von Kyodo Yakuhin K.G.

Beispiele 35 bis 39 und Vergleichsbeispiele 5 und 6

Eine Überzugszusammensetzung wurde auf gleiche Weise wie in Beispiel 31 beschrieben hergestellt, mit der Ausnahme, daß die Menge an 2-Hydroxy-4-octoxybenzophenon wie in Tabelle XVI aufgeführt geändert wurde. Die Überzugszusammensetzung wurde auf eine 2 mm dicke Polycarbonatplatte auf gleiche Weise wie in Beispiel 31 beschrieben aufgebracht. Das Aussehen, die Härte und Adhäsion vor und nach dem Bewitterungstest sind in Tabelle XVI aufgeführt.

509810/1099

Tabelle XVI

Menge an 2- vor dem Bewitterungstest nach dem Bewitt. Test nach dem Bewitterungs-
Hydroxy-4- Aussehen Härte Adhäsion während 400 Stunden test während 800 Std.
octoxybenzo- Aussehen Härte Adhäsion Aussehen Härte Adhäs.

(Teile)

| | | | | | | | | | | |
|----------|----|-------------------|-----|---------|-----------------|------|---------|-----------------|------|---------|
| Vgl.B. 5 | 1 | gut | 5,2 | 100/100 | wird gelb | 10,3 | 81/100 | wird gelb | 10,7 | 67/100 |
| Beisp.35 | 3 | " | 5,1 | 100/100 | wird etwas gelb | 9,6 | 100/100 | wird etwas gelb | 10,5 | 86/100 |
| " 36 | 6 | " | 5,3 | 100/100 | gut | 10,5 | 100/100 | gut | 11,3 | 89/100 |
| " 37 | 12 | " | 5,2 | 100/100 | " | 10,5 | 100/100 | " | 11,3 | 100/100 |
| " 38 | 20 | " | 5,4 | 100/100 | " | 10,7 | 100/100 | " | 11,7 | 100/100 |
| " 39 | 40 | etwas trübe | 6,7 | 100/100 | etwas trübe | 13,5 | 100/100 | etwas trübe | 13,9 | 100/100 |
| Vgl.B. 6 | 80 | keine Transparenz | / | / | - | - | - | - | - | - |

509810/1099

Beispiele 40 bis 52

Verschiedene Überzugszusammensetzungen, die in Tabelle XVII aufgeführt sind, wurden auf verschiedene Formgegenstände wie in Tabelle XVII angegeben, aufgebracht. Die Härte und Adhäsion der beschichteten Formkörper vor und nach dem Bewitterungstest sind in Tabelle XVIII aufgeführt.

In Tabelle XVII bedeuten:

MTMS - Methyltrimethoxysilan
MTBS - Methyltributoxysilan
VTES - Vinyltriäthoxysilan
PTES - Phenyltriäthoxysilan
TES - Tetraäthylsilikat

509810/1099

Tabelle XVII

| Bei- Nr. | trialk- oxy- silan | Teile Silikat | Teile Aminoharz | Teile Butyrol- Harz | UV-Ab- sorber | Teile Härtings- katalysa- tor | Teile | | | |
|-------------|--------------------------|---------------|-----------------|-------------------------|-----------------------|-------------------------------------|---|-----------------|-------|-----|
| 40 | MTMS | 200 | - | U-VAN 20-SA | 200 | - | Viosorb- 130 | 15 | HCl | 2,0 |
| 41 | " | 120 | - | " | 60 | - | " | 15 | " | 2,0 |
| 42 | " | 60 | - | " | 120 | - | " | 15 | " | 2,0 |
| 43 | MTBS | 240 | - | " | 200 | - | 2-Hydroxy-15 4-methoxy- benzophenon | 15 | " | 2,0 |
| 44 | VTES | 244 | - | " | 200 | - | Tinuvin-P | 15 | " | 2,0 |
| 45 | PTES | 185 | - | " | 200 | - | Viosorb90 | 15 | " | 2,0 |
| 46 | MTMS | 200 | - | U-VAN 10-S ¹ | 182 | - | - | - | " | 2,0 |
| 47 | " | 162 | TES | 70 | 182 S-LEC- BL-3 | 12 | - | - | " | 4,0 |
| 48 | " | 117 | " | 137 | U-VAN 90 ² | 167 | 38 | Viosorb- 130 | 15 | 4,0 |
| 49 | " | 200 | - | - | U-VAN 20-SA | 50 | - | 15 | AcONa | 5,0 |
| 50 | " | 117 | TES | 137 | " | 50 S-LEC- BL-3 | 20 | 15 | " | 5,0 |
| 51 | " | 200 | - | - | " | 200 | - | 15 | HCl | 4,0 |
| 52 | " | 117 | TES | 137 | " | 200 S-LEC- BL-3 | 37 | 15 | " | 4,0 |

509810/1099

ORIGINAL INSPECTED

2436³⁵1

35

| Tabelle XVII (Fortsetzung) | | | |
|----------------------------|---|---------------------|----------------|
| Bei- spiel Nr. | zu beschichtende Gegenstände | Härtungsbedingungen | |
| | | Temp. (°C) | Zeit (Min.) |
| 40 | Polycarbonatplatte | 130 | 60 |
| 41 | " | 130 | 60 |
| 42 | " | 130 | 60 |
| 43 | " | 130 | 60 |
| 44 | " | 130 | 60 |
| 45 | " | 130 | 60 |
| 46 | " | 130 | 60 |
| 47 | " | 130 | 60 |
| 48 | " | 130 | 60 |
| 49 | Polycarbonatlinsen (durch Injektion gegossener Gegenstand) | 90 | 60 |
| 50 | " | 90 | 60 |
| 51 | " | 130 | 120 |
| 52 | " | 130 | 120 |

1 eine 55%ige Butanol/Xylol-Lösung aus butyliertem Methylolharnstoff (ein Produkt der Mitsui Toatsu K.K.)

2 eine 60%ige Butanol/Xylol-Lösung aus Benzoguanaminharz (ein Produkt der Mitsui Toatsu K.K.)

Tabelle XVIII

| Bei- spiel Nr. | vor dem Bewitt. Test | | nach dem Bewitt. Test während 400 Stunden | | nach dem Bewitt. Test währ. 800 Std. | |
|----------------------|-------------------------|----------|--|----------|---|----------|
| | Härte | Adhäsion | Härte | Adhäsion | Härte | Adhäsion |
| 40 | 6,1 | 100/100 | 12,9 | 100/100 | 19,8 | 100/100 |
| 41 | 5,7 | " | 11,7 | " | 18,4 | " |
| 42 | 7,3 | " | 13,2 | " | 20,6 | " |
| 43 | 6,8 | " | 13,0 | " | 20,5 | " |
| 44 | 7,4 | " | 13,9 | " | 21,3 | " |
| 45 | 8,0 | " | 15,0 | " | 23,0 | " |
| 46 | 8,3 | " | 15,7 | " | 22,8 | 81/100 |
| 47 | 6,9 | " | 12,1 | " | 13,9 | 77/100 |
| 48 | 7,0 | " | 14,0 | " | 13,5 | 100/100 |
| 49 | 7,3 | " | 10,9 | " | 11,9 | 79/100 |
| 50 | 6,3 | " | 9,8 | " | 10,5 | 92/100 |
| 51 | 7,4 | " | 13,7 | " | 13,5 | 83/100 |
| 52 | 5,5 | " | 12,6 | " | 11,4 | 100/100 |

P a t e n t a n s p r ü c h e

1

Überzugszusammensetzung, enthaltend

(A) ein hydrolysiertes Produkt eines Alkoxysilans,

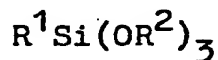
(B) ein organisches Lösungsmittel und

(C) einen Härtungskatalysator,

dadurch gekennzeichnet, daß die Zusammensetzung weiter enthält

(D) ein schmelzbares und lösliches Aminoharz

und daß die Komponente (A) das hydrolysierte Produkt von mindestens einem Organotrialkoxysilan wie Alkyltrialkoxysilanen, Alkenyltrialkoxysilanen oder/und Phenyltrialkoxysilanen der folgenden Formel



ist, worin

R^1 eine Alkyl- oder Alkenylgruppe mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder eine Phenylgruppe und R^2 eine Alkylgruppe mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen bedeuten.

2. Zusammensetzung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß sie weiter

(E) ein hydrolysiertes Produkt eines Kieselsäureesters der folgenden Formel



enthält, worin R^2 die gleiche Bedeutung wie in Anspruch 1 besitzt.

3. Zusammensetzung nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß sie weiter

(F) Polyvinylbutyral

enthält.

4. Zusammensetzung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß sie weiter

(G) mindestens ein Ultraviolett-Absorptionsmittel wie Phenylsalicylatverbindungen, Hydroxybenzophenonverbindungen und/oder Hydroxybenzotriazolverbindungen enthält.

509810/1099

5. Zusammensetzung nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß sie ein Ultraviolett-Absorptionsmittel (G), wie in Anspruch 4 aufgeführt, enthält.
6. Zusammensetzung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Aminoharz ein veräthertes Methyloilmelamin ist.
7. Verwendung der Zusammensetzung von Anspruch 1 zum Beschichten einer Oberfläche eines Formkörpers aus Polycarbonat.
8. Zusammensetzung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der Anteil an Aminoharz (D) mindestens 10 bis 300 Gew.Teile/100 Gew.Teile Trialkoxysilan (A), berechnet als $R^1SiO_{1,5}$, beträgt.
9. Zusammensetzung nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß der Anteil an Aminoharz (D) 10 bis 300 Gew.Teile pro 100 Gew.Teile der Gesamtmenge an Trialkoxysilan (A), berechnet als $R^1SiO_{1,5}$; und Silikat (E), berechnet als SiO_2 , beträgt und daß das Molverhältnis von Trialkoxysilan (A), berechnet als $R^1SiO_{1,5}$, zu Silikat (E), berechnet als SiO_2 , 100:1 bis 20:80 beträgt.
10. Zusammensetzung nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß der Anteil an Polyvinylbutyral (F) 1 bis 60 Gew.Teile/100 Gew Teile der Gesamtmenge an Trialkoxysilan (A), berechnet als $R^1SiO_{1,5}$, und Silikat (E), berechnet als SiO_2 , beträgt.
11. Zusammensetzung nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß der Anteil an Ultraviolett-Absorptionsmittel (G) 2 bis 60 Gew.Teile/100 Gew.Teile Trialkoxysilan (A), berechnet als $R^1SiO_{1,5}$, beträgt.

12. Zusammensetzung nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß der Anteil an Ultraviolett-Absorptionsmittel (G) 2 bis 60 Gew.Teile/100 Gew.Teile der Gesamtmenge an Trialkoxysilan (A), berechnet als $R^1SiO_{1,5}$, und Silikat (E), berechnet als SiO_2 , beträgt.

13. Gegenstand, beschichtet mit der Zusammensetzung von Anspruch 1 in einer Dicke von 2 bis 50 Mikron.

THIS PAGE BLANK (USPTO,